

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-110181

(P2002-110181A)

(43) 公開日 平成14年4月12日 (2002. 4. 12)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
H 0 1 M 4/96		H 0 1 M 4/96	B 4 G 0 6 9
B 0 1 J 35/06		B 0 1 J 35/06	L 5 H 0 1 8
37/02	3 0 1	37/02	3 0 1 M 5 H 0 2 6
			3 0 1 P
37/34		37/34	

審査請求 未請求 請求項の数38 O L (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-298882(P2000-298882)

(22) 出願日 平成12年9月29日 (2000. 9. 29)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 今里 峰久

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(74) 代理人 100078031

弁理士 大石 皓一 (外2名)

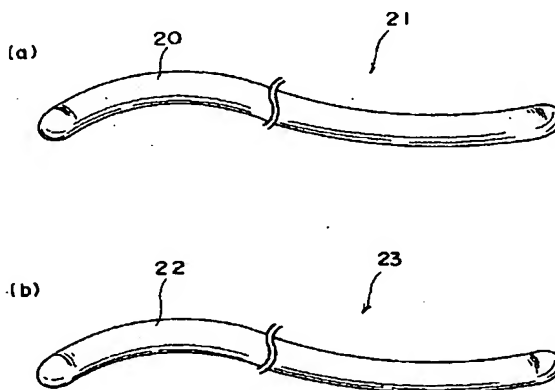
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガス拡散電極及びその製造方法、並びに、燃料電池及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者が近接したガス拡散電極を提供する。

【解決手段】 本発明によるガス拡散電極は、触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンを含む。これにより、触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンとが互いに絡み合うため、導電材料である繊維状カーボン本体、触媒及びプロトン伝導材料の三者をきわめて近接させることができる。



BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンとを含むことを特徴とするガス拡散電極。

【請求項2】 前記触媒担持繊維状カーボンと前記プロトン伝導材担持繊維状カーボンとが互いに絡み合っていることを特徴とする請求項1に記載のガス拡散電極。

【請求項3】 前記触媒担持繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持繊維状カーボンが、カーボンシートの表面に形成されていることを特徴とする請求項1に記載のガス拡散電極。

【請求項4】 前記触媒が、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケル-ランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム及び金からなる群より選ばれた1の材料からなることを特徴とする請求項1に記載のガス拡散電極。

【請求項5】 前記プロトン伝導材料が、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料からなることを特徴とする請求項1に記載のガス拡散電極。

【請求項6】 前記炭素を主成分とする炭素質材料が、フラーレンからなることを特徴とする請求項5に記載のガス拡散電極。

【請求項7】 繊維状カーボンに触媒を担持させる触媒担持工程と、繊維状カーボンにプロトン伝導材料を担持させるプロトン伝導材担持工程と、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを互いに絡み合わせる混合工程とを備えるガス拡散電極の製造方法。

【請求項8】 前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を気相成膜法により形成するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項9】 前記気相成膜法が、スパッタリング法であることを特徴とする請求項8に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項10】 前記気相成膜法が、真空蒸着法であることを特徴とする請求項8に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項11】 前記気相成膜法が、パルスレーザデポジション法であることを特徴とする請求項8に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項12】 前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を化学的担持法により形成するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項13】 前記触媒担持工程が、前記触媒を含む

炭素系電極を用いたアーク放電法により形成するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項14】 前記プロトン伝導材担持工程が、前記プロトン伝導材料を含む分散液に前記繊維状カーボンを浸漬するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項15】 前記混合工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項16】 前記混合工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これをカーボンシートに塗布するものであることを特徴とする請求項7に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項17】 前記塗布が、スプレードライ法によるものであることを特徴とする請求項16に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項18】 前記塗布が、滴下法によるものであることを特徴とする請求項16に記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項19】 一方の面に触媒層が形成された酸素電極と、一方の面に触媒層が形成された燃料電極と、前記酸素電極の前記一方の面と前記燃料電極の前記一方の面に挟持されたプロトン伝導体部とを備え、前記酸素電極の前記触媒層及び／又は前記燃料電極の前記触媒層に、触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンとが含まれていることを特徴とする燃料電池。

【請求項20】 前記触媒担持繊維状カーボンと前記プロトン伝導材担持繊維状カーボンとが互いに絡み合っていることを特徴とする請求項19に記載の燃料電池。

【請求項21】 前記酸素電極及び／又は前記燃料電極がカーボンシートからなることを特徴とする請求項19に記載の燃料電池。

【請求項22】 前記触媒が、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケル-ランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム及び金からなる群より選ばれた1の材料からなることを特徴とする請求項19に記載の燃料電池。

【請求項23】 前記プロトン伝導体部が、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料からなることを特徴とする請求項19に記載の燃料電池。

【請求項 24】 前記プロトン伝導材料が、前記プロトン伝導部を構成する材料と同じ材料からなることを特徴とする請求項 23 に記載の燃料電池。

【請求項 25】 前記炭素を主成分とする炭素質材料が、フラーレンからなることを特徴とする請求項 23 に記載の燃料電池。

【請求項 26】 酸素電極、燃料電極及びこれらに挟持されたプロトン伝導部を備える燃料電池の製造方法であって、繊維状カーボンに触媒を担持させる触媒担持工程と、繊維状カーボンにプロトン伝導材料を担持させるプロトン伝導材担持工程と、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを互いに絡み合わせて前記酸素電極及び／又は前記燃料電極と前記プロトン伝導部との間に形成する触媒層形成工程とを備える燃料電池の製造方法。

【請求項 27】 前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を気相成膜法により形成するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 28】 前記気相成膜法が、スパッタリング法であることを特徴とする請求項 27 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 29】 前記気相成膜法が、真空蒸着法であることを特徴とする請求項 27 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 30】 前記気相成膜法が、パルスレーザデポジション法であることを特徴とする請求項 27 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 31】 前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を化学的担持法により形成するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 32】 前記触媒担持工程が、前記触媒を含む炭素系電極を用いたアーク放電法により形成するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 33】 前記プロトン伝導材担持工程が、前記プロトン伝導材料を含む分散液に前記繊維状カーボンを浸漬するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 34】 前記酸素電極及び／又は前記燃料電極がカーボンシートからなり、前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過してシート状に成形した後、前記カーボンシートに貼設するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 35】 前記酸素電極及び／又は前記燃料電極

がカーボンシートからなり、前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを前記カーボンシートに塗布するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 36】 前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを前記プロトン伝導部部に塗布するものであることを特徴とする請求項 26 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 37】 前記塗布が、スプレードライ法によるものであることを特徴とする請求項 35 に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 38】 前記塗布が、滴下法によるものであることを特徴とする請求項 35 に記載の燃料電池の製造方法。

20 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ガス拡散電極及びその製造方法、並びに、燃料電池及びその製造方法に関し、特に、導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者が近接したガス拡散電極及びその製造方法、並びに、これを用いた燃料電池及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】産業革命以後、自動車などのエネルギー源としてはもちろん、電力製造などのエネルギー源として、ガソリン、軽油などの化石燃料が広く用いられてきた。この化石燃料の利用によって、人類は飛躍的な生活水準の向上や産業の発展などの利益を享受することができたが、その反面、地球は深刻な環境破壊の脅威にさらされ、さらに、化石燃料の枯渇の虞が生じてその長期的な安定供給に疑問が投げかけられる事態となりつつある。

【0003】そこで、水素は、水に含まれ、地球上に無尽蔵に存在している上、物質あたりに含まれる化学エネルギー量が大きく、また、エネルギー源として使用するとき、有害物質や地球温暖化ガスなどを放出しないなどの理由から、化石燃料に代わるクリーンで、かつ、無尽蔵なエネルギー源として、近年、大きな注目を集めるようになってきている。

【0004】ことに、近年は、水素エネルギーから電気エネルギーを取り出すことができる電気エネルギー発生装置の研究開発が盛んにおこなわれており、大規模発電から、オンサイトな自家発電、さらには、自動車用電源としての応用が期待されている。

【0005】水素エネルギーから電気エネルギーを取り出すための電気エネルギー発生装置、すなわち燃料電池

は、水素が供給される水素電極と、酸素が供給される酸素電極とを有している。水素電極に供給された水素は、触媒の作用によって、プロトン（陽子）と電子に解離され、電子は水素電極の集電体で集められ、他方、プロトンは酸素電極に運ばれる。水素電極で集められた電子は、負荷を経由して、酸素電極に運ばれる。一方、酸素電極に供給された酸素は、触媒の作用により、水素電極から運ばれたプロトンおよび電子と結合して、水を生成する。このようにして、水素電極と酸素電極との間に起電力が生じ、負荷に電流が流れる。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】このように、水素エネルギーから電気エネルギーを取り出す燃料電池においては、水素電極と酸素電極との間に起電力を生じさせるためには、水素電極においては水素をプロトン（陽子）と電子に解離することが必要であり、一方、酸素電極においてはプロトン、電子及び酸素を反応させて水を生成することが必要である。したがって、水素電極においては、水素のプロトンと電子との解離を促進する触媒層が必要とされ、酸素電極においては、プロトン、電子及び酸素の結合を促進する触媒層が必要とされる。

【0007】しかしながら、水素電極側において触媒の作用によりプロトンが生成されても、これが酸素電極側に移動し、酸素電極側において触媒の作用により電子及び酸素と結合しなければ、水素電極と酸素電極との間に起電力は生じない。このため、水素電極側においては、触媒の作用により生成されたプロトンが効率よく酸素電極側に移動することが要求され、酸素電極側においては、水素電極側より供給されるプロトンが効率よく触媒に達することが要求される。これを達成するためには、水素電極側及び酸素電極側のいずれにおいても、導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者が、より近接している必要がある。

【0008】したがって、本発明の目的は、導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者が近接したガス拡散電極及びその製造方法を提供することである。

【0009】また、本発明の他の目的は、導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者が近接したガス拡散電極を用いることによって、電気エネルギーの生成効率の高い燃料電池及びその製造方法を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明のかかる目的は、触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンとを含むことを特徴とするガス拡散電極によって達成される。

【0011】本発明の前記目的はまた、一方の面に触媒層が形成された酸素電極と、一方の面に触媒層が形成された燃料電極と、前記酸素電極の前記一方の面と前記燃料電極の前記一方の面に挟持されたプロトン伝導体部と

を備え、前記酸素電極の前記触媒層及び／又は前記燃料電極の前記触媒層に、触媒が担持された複数の触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持された複数のプロトン伝導材担持繊維状カーボンとが含まれていることを特徴とする燃料電池によって達成される。

【0012】本発明によれば、燃料電池の電極に、触媒が担持された触媒担持繊維状カーボンと、プロトン伝導材料が担持されたプロトン伝導材担持繊維状カーボンとが含まれていることから、導電材料、触媒及びプロトン伝導材料の三者を近接させることができ、これにより電気エネルギーの生成効率の高い燃料電池を提供することが可能となる。

【0013】本発明の好ましい実施態様においては、前記触媒担持繊維状カーボンと前記プロトン伝導材担持繊維状カーボンとが互いに絡み合っている。

【0014】本発明の好ましい実施態様によれば、触媒担持繊維状カーボンとプロトン伝導材担持繊維状カーボンとが互いに絡み合っていることから、触媒とプロトン伝導材料との接触を確実に確保することができる。

【0015】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒担持繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持繊維状カーボンが、カーボンシートの表面に形成されている。

【0016】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒が、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケル-ランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム及び金からなる群より選ばれた1の材料からなる。

【0017】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記プロトン伝導材料が、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料からなる。

【0018】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記プロトン伝導体部が、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料からなる。

【0019】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記プロトン伝導材料が、前記プロトン伝導体部を構成する材料と同じ材料からなる。

【0020】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記プロトン伝導材料が、フラーレンからなる。

【0021】本発明の前記目的はまた、繊維状カーボンに触媒を担持させる触媒担持工程と、繊維状カーボンにプロトン伝導材料を担持させるプロトン伝導材担持工程と、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを互いに絡み合わせる混合工程とを備えるガス拡散電極の製造方法によって達成される。

【0022】本発明の前記目的はまた、酸素電極、燃料電極及びこれらに挟持されたプロトン伝導体部を備える燃料電池の製造方法であって、繊維状カーボンに触媒を担持させる触媒担持工程と、繊維状カーボンにプロトン伝導材料を担持させるプロトン伝導材担持工程と、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを互いに絡み合わせて前記酸素電極及び／又は前記燃料電極と前記プロトン伝導体部との間に形成する触媒層形成工程とを備える燃料電池の製造方法によって達成される。

【0023】本発明によれば、触媒が担持された繊維状カーボンとプロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを互いに絡み合わせていることから、触媒とプロトン伝導材料との接触を確実に確保することができ、これにより、電気エネルギーの生成効率の高い燃料電池を製造することが可能となる。

【0024】本発明の好ましい実施態様においては、前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を気相成膜法により形成するものである。

【0025】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、スパッタリング法である。

【0026】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、真空蒸着法である。

【0027】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記気相成膜法が、パルスレーザデポジション法である。

【0028】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒担持工程が、前記繊維状カーボンに前記触媒を化学的担持法により形成するものである。

【0029】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒担持工程が、前記触媒を含む炭素系電極を用いたアーク放電法により形成するものである。

【0030】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記プロトン伝導材担持工程が、前記プロトン伝導材料を含む分散液に前記繊維状カーボンを浸漬するものである。

【0031】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記混合工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過するものである。

【0032】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記酸素電極及び／又は前記燃料電極がカーボンシートからなり、前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを濾過してシート状に成形した後、前記カーボンシートに

貼設するものである。

【0033】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記混合工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これをカーボンシートに塗布するものである。

【0034】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記酸素電極及び／又は前記燃料電極がカーボンシートからなり、前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを前記カーボンシートに塗布するものである。

【0035】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記触媒層形成工程が、前記触媒担持工程により前記触媒が担持された繊維状カーボン及び前記プロトン伝導材担持工程により前記プロトン伝導材料が担持された繊維状カーボンを分散液中に導入し、これを前記プロトン伝導体部に塗布するものである。

【0036】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記塗布が、スプレードライ法によるものである。

【0037】本発明のさらに好ましい実施態様においては、前記塗布が、滴下法によるものである。

【0038】

【発明の実施の形態】以下、添付図面に基いて、本発明の好ましい実施態様につき、詳細に説明を加える。

【0039】図1は、本発明の好ましい実施態様にかかる燃料電池の概略的構成を示す図面である。

【0040】図1に示されるように、本実施態様にかかる燃料電池は、酸素電極1と、燃料電極である水素電極2と、酸素電極1及び水素電極2に挟持されたプロトン伝導体部3とを備えている。酸素電極1は、カーボンシートからなる電極基体4とその表面に形成された触媒層5によって構成され、同様に、水素電極2は、カーボンシートからなる電極基体6とその表面に形成された触媒層7によって構成されている。

【0041】また、図1に示されるように、酸素電極1の電極基体4からは正極リード8が導出され、水素電極2の電極基体6からは負極リード9が導出されており、これら正極リード8及び負極リード9は、図示しない負荷に接続される。酸素電極1側においては、空気10が導入口11から流路12に供給され、排出口13から排出されるように構成されており、水素電極2側においては、水素供給源14より供給される水素15が、導入口16から流路17に供給され、排出口18から排出されるように構成されている。

【0042】導入口16から流路17に供給された水素15は、カーボンシートからなる電極基体6を介してその表面に形成された触媒層7に達し、触媒作用によって

プロトンと電子とに解離される。このうち電子は、電極基体6を経由して負極リード9へ移動し、図示しない負荷へ供給され、プロトンは、プロトン伝導体部3を経由して酸素電極1側へ移動する。一方、導入口11から流路12に供給された酸素10は、カーボンシートからなる電極基体4を介してその表面に形成された触媒層5に達し、触媒作用によって、プロトン伝導体部3より供給されるプロトン及び正極リード8を介して負荷より供給される電子と結合して水となる。このようにして、所望の起電力が取り出される。

【0043】ここで、プロトン伝導体部3は、水素15の透過を防止するとともにプロトンを透過させる膜であり、その材料は特に限定されないが、炭素を主成分とする炭素質材料を母体とし、これにプロトン解離性の基が導入されてなる材料を用いることが好ましい。ここで、「プロトン解離性の基」とは、「プロトンが電離により離脱し得る官能基」であることを意味する。

【0044】プロトン伝導体部3の母体となる炭素質材料には、炭素を主成分とするものであれば、任意の材料を使用することができるが、プロトン解離性の基を導入した後に、イオン導電性が電子伝導性よりも大であることが必要である。ここで、母体となる炭素質材料としては、具体的には、炭素原子の集合体である炭素クラスターや、カーボンチューブを含む炭素質材料を挙げることができる。

【0045】炭素クラスターには種々のものがあり、フラレンや、フラレン構造の少なくとも一部に開放端を持つものダイヤモンド構造を持つもの等が好適である。もちろんこれに限らず、プロトン解離性の基を導入した後にイオン導電性が電子伝導性よりも大であるものであれば、いかなるものであっても良い。

【0046】プロトン伝導体部3の母体となる炭素質材料としては、フラレンを選択することが好ましく、これにプロトン解離性の基、例えば-OH基、-OSO₃H基、-COOH基、-SO₃H基、-OPO(OH)₂基が導入された材料をプロトン伝導体部3の材料として用いることが好ましい。

【0047】また、水素供給源14としては、水素ボンベ、水素吸蔵合金若しくは炭素質水素吸蔵材料を用いることができ、炭素質水素吸蔵材料としては、フラレン、カーボンナノファイバー、カーボンナノチューブ、炭素スス、ナノカプセル、バッキーオニオン、カーボンファイバー等が挙げられる。

【0048】電極基体4、6にそれぞれ形成された触媒層5、7は、繊維状カーボン集合体によって構成される。繊維状カーボンとしては、針状黒鉛を用いることができる。かかる繊維状カーボン集合体は、表面に触媒20が形成されている繊維状カーボン（触媒担持繊維状カーボン）21と、表面にプロトン伝導材料22が形成されている繊維状カーボン（プロトン伝導材担持繊維状カ

ーボン）23とからなり、これら2種類の繊維状カーボンが互いに絡み合うことによって触媒層5、7が形成される。

【0049】図2(a)は、触媒担持繊維状カーボンを示す略斜視図であり、図2(b)は、プロトン伝導材担持繊維状カーボンを示す略斜視図である。

【0050】触媒担持繊維状カーボン21の表面に形成されている触媒20の種類としては、白金、白金合金、パラジウム、マグネシウム、チタン、マンガン、ランタン、バナジウム、ジルコニウム、ニッケル-ランタン合金、チタン-鉄合金、イリジウム、ロジウム、金などがあるが、好ましいのは、白金及び白金合金である。また、かかる触媒は、繊維状カーボンの表面全体に形成されていることが好ましいが、表面の一部のみ形成されていても良い。

【0051】また、プロトン伝導材担持繊維状カーボン23の表面に形成されているプロトン伝導材料22の種類としては、プロトン伝導体部3を構成するプロトン伝導材料と同じ材料を選択することが好ましい。例えば、プロトン伝導体部3の材料として、フラレンにプロトン解離性の基である-OH基が導入された材料（フラレノール）を用いた場合、プロトン伝導材料22の種類としては、フラレノールを選択することが好ましい。また、かかるプロトン伝導材料は、繊維状カーボンの表面全体に形成されていることが好ましいが、表面の一部のみ形成されていても良い。

【0052】このように、本実施態様にかかる燃料電池は、表面に触媒20が形成されている触媒担持繊維状カーボン21と、表面にプロトン伝導材料22が形成されているプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを用い、これら2種類の繊維状カーボンが互いに絡み合うことによって触媒層5、7が形成されていることから、導電材料である繊維状カーボン本体、触媒及びプロトン伝導材料の三者をきわめて近接させることができ、これにより、電気エネルギーの生成効率を非常に高くすることが可能となる。

【0053】次に、本実施態様にかかる燃料電池の製造方法について説明する。

【0054】まず、所定量の繊維状カーボンを準備し、その表面に触媒20を担持させる。繊維状カーボンの表面に触媒20を担持させる方法としては、準備した繊維状カーボンをスパッタリング用のチャンバー内に導入し、スパッタリング用のチャンバー内において、繊維状カーボンに対し、スパッタリング法により触媒20を成膜すればよい。かかる工程により、繊維状カーボンの表面には触媒20が担持され、触媒担持繊維状カーボン21が生成される。このとき、繊維状カーボンを振動させながらスパッタリングを行えば、繊維状カーボン表面のより広い面積にわたって触媒20を形成することができる。

【0055】また、繊維状カーボンの表面に触媒20を担持させる別の方法として、繊維状カーボンを分散液中に導入し、フィルタを用いてこれを濾過することにより繊維状カーボンをシート状に成形した後、スパッタリング法により触媒20を成膜しても良い。互いに絡み合いシート状に固まっているシート状の触媒担持繊維状カーボン21は、超音波を印加することによって、個々の触媒担持繊維状カーボン21に物理的に分離することができる。このように、一旦繊維状カーボンをシート状に成形してから触媒20を形成し、その後、個々の触媒担持繊維状カーボン21に物理的に分離すれば、繊維状カーボンのハンドリングが容易となる。

【0056】次に、所定量の繊維状カーボンを別途準備し、その表面にプロトン伝導材料22を担持させる。繊維状カーボンの表面にプロトン伝導材料22を担持させる方法としては、プロトン伝導材料、例えばフラレノールを含む分散液に繊維状カーボンを浸漬すればよい。

【0057】次に、触媒担持繊維状カーボン21とプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを混合して互いに絡み合わせ、触媒層5、7を形成する。触媒担持繊維状カーボン21とプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを混合して触媒層5、7を形成する方法としては、分散液中に、触媒担持繊維状カーボン21とプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを混入し、フィルタを用いてこれを濾過することにより、触媒担持繊維状カーボン21とプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを混合して互いに絡み合わせ、シート状に成形すればよい。この場合、分散液としては、水、メタノール・エタノール等のアルコール類及びトルエンの混合液に、微量の水酸化ナトリウムを添加した混合液を用いればよい。ここで、水酸化ナトリウムは、触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23の凝集を防止する役割を果たす。また、フィルタとしては、分散液を濾過し、これに混入された触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23を採集可能であればよく、ガラス繊維からなるフィルタを用いればよい。

【0058】次に、酸素電極1及び水素電極2の電極基体4、6となるカーボンシートを準備し、このカーボンシート的一方の面に、上述の方法にて作製した触媒層5、7を貼り合わせる。これにより、酸素電極1及び水素電極2が完成する。

【0059】次に、このようにして完成した酸素電極1及び水素電極2でプロトン伝導体部3を挟持し、酸素電極1側には、空気10の導入口11、流路12及び排出口13を設け、水素電極2側には、水素15の導入口16、流路17及び排出口18を設けることによって、本実施態様による燃料電池が完成する。

【0060】このように、本実施態様にかかる方法により酸素電極1及び水素電極2を作製すれば、触媒担持

繊維状カーボン21とプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とが実質的に均一に混ざり合うため、導電材料である繊維状カーボン本体、触媒及びプロトン伝導材料の三者を効果的に近接させることができ、これにより、電気エネルギーの生成効率を非常に高くすることが可能となる。

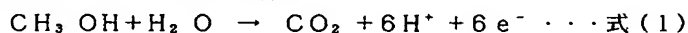
【0061】本発明は、以上の実施態様に限定されことなく、特許請求の範囲に記載された発明の範囲内で種々の変更が可能であり、それらも本発明の範囲内に包含されるものであることはいうまでもない。

【0062】例えば、上記実施態様においては、触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23の本体となる繊維状カーボンとして、針状黒鉛を用いているが、繊維状カーボンとしてはこれに限定されず、他の種類の繊維状カーボン、例えばカーボンナノチューブを選択しても良い。さらに、繊維状カーボンとして、針状黒鉛とカーボンナノチューブの両方を用いても良い。但し、繊維状カーボンとしてカーボンナノチューブを選択した場合、これらは非常に微細な繊維状物質であるため、互いに絡み合いやすい反面、これを過度に積層するとガス拡散電極として要求されるガス透過性を確保することができない。したがって、ガス拡散電極として要求されるガス透過性を十分に確保するためには、繊維状カーボンとしてカーボンナノチューブを用いる場合、所定の割合で針状黒鉛を混合することが好ましい。

【0063】また、上記実施態様においては、触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23によって触媒層5、7を形成する方法として、分散液中にこれらを混入し、フィルタで濾過することによってシート状としているが、触媒層5、7を形成する方法としてはこれに限定されず、他の方法を用いても良い。例えば、触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23を混入した分散液を、電極基体4、6であるカーボンシートの表面に塗布することによって電極基体4、6上に触媒層5、7を形成し、これによって酸素電極1及び水素電極2を作製しても良い。この場合、カーボンシートの表面に上記分散液を塗布する方法としては、スプレードライ法や滴下法を用いればよい。さらに、触媒担持繊維状カーボン21及びプロトン伝導材担持繊維状カーボン23を混入した分散液を塗布する場合、塗布の対象としては電極基体4、6であるカーボンシートに限定されず、プロトン伝導体部3に対して当該分散液を塗布することによって触媒層5、7を形成しても良い。

【0064】さらに、上記実施態様においては、繊維状カーボンの表面に触媒を形成する方法としてスパッタリング法を用いているが、繊維状カーボンの表面に触媒を形成する方法としてはスパッタリング法に限定されず、他の方法、例えば、真空蒸着法やパルスレーザデポジシ

ョン法等の他の気相成膜法を用いても良い。さらに、繊維状カーボンの表面に触媒を形成する方法としては、上記気相成膜法にも限定されず、例えば、白金錯体を含む溶液を用いる化学的担持法（液相化学担持法）や、白金を含む炭素系電極を用いたアーク放電法を用いても良い。化学的担持法（液相化学担持法）では、例えば塩化白金酸水溶液を亜硫酸水素ナトリウムや過酸化水素で処理し、次に、この溶液に繊維状カーボンを混入し、攪拌することにより、触媒担持繊維状カーボン21を得ることができる。アーク放電法では、アーク放電の電極部に白金や白金合金を部分的に組み込んでおき、これをアーク放電させることによって蒸発させ、チャンバー内に収*



したがって、全体としては式(3)に示される反応が進行することになり、所定の起電力を得ることができる。*



但し、燃料ガスとしてメタノールを気化させたガスを用いた場合、水の他に二酸化炭素が生成される。

【0068】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、表面に触媒20が形成されている触媒担持繊維状カーボン21と、表面にプロトン伝導材料22が形成されているプロトン伝導材担持繊維状カーボン23とを用い、これら2種類の繊維状カーボンが互いに絡み合うことによって触媒層5、7が形成されていることから、導電材料である繊維状カーボン本体、触媒及びプロトン伝導材料の三者をきわめて近接させることができる。これにより、電気エネルギーの生成効率を非常に高くすることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の好ましい実施態様により製造されるべき燃料電池の概略的構成を示す図面である。

【図2】図2(a)は、触媒担持繊維状カーボンを示す略斜視図であり、図2(b)は、プロトン伝導材担持繊維状カーボンを示す略斜視図である。

【符号の説明】

* 容してある炭素質材料に付着させることにより、触媒担持繊維状カーボン21を得ることができる。

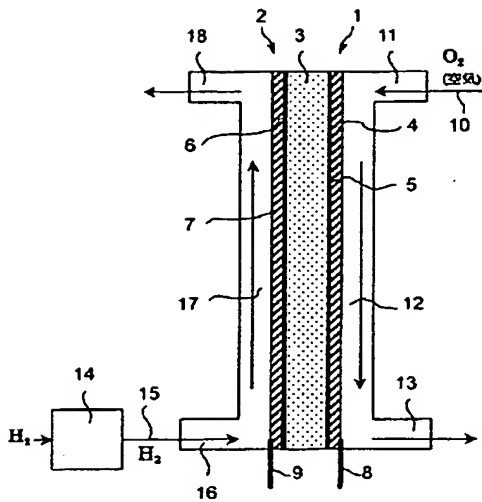
【0065】さらに、上記実施態様においては、作製された燃料電池の燃料ガスとして、水素ガスを使用しているが、燃料ガスとしては水素ガスに限定されず、他の燃料ガス、例えばメタノールを気化させたガスを用いても良い。この場合、メタノールを気化させたガスが供給される負極においては、式(1)に示される反応が進行し、空気が供給される酸素電極1（正極）においては式(2)に示される反応が進行する。

【0066】

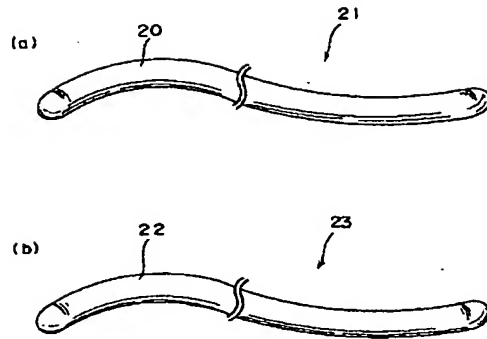
※【0067】

- 1 酸素電極
- 2 水素電極
- 20 3 プロトン伝導体部
- 4, 6 電極基体
- 5, 7 触媒層
- 8 正極リード
- 9 負極リード
- 10 空気
- 11 導入口
- 12 流路
- 13 排出口
- 14 水素供給源
- 30 15 水素
- 16 導入口
- 17 流路
- 18 排出口
- 20 触媒
- 21 触媒担持繊維状カーボン
- 22 プロトン伝導材料
- 23 プロトン伝導材担持繊維状カーボン

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.

H01M 4/88
8/10

識別記号

F I

H01M 4/88
8/10

キーワード (参考)

K

Fターム (参考) 4G069 AA03 AA08 BA08A BA08B
BC10A BC33A BC42A BC50A
BC51A BC54A BC62A BC66A
BC68A BC71A BC72A BC74A
BC75A CC32 DA06 EA07
FA02 FA03 FB01 FB02 FB23
FB58 FB68
5H018 AA06 AS02 AS03 BB05 BB07
BB08 BB12 BB16 CC06 DD05
DD08 EE02 EE03 EE04 EE05
EE06 EE10
5H026 AA06 BB03 BB04 BB08 BB10
CX02 CX04 EE02 EE05 EE06
EE08

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.